

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number :
2001-319821

(43)Date of publication of application :
16.11.2001

(51)Int.Cl.
H01F 41/02

B22D 11/06

B22F 1/00

B22F 9/04

C21D 6/00

C22C 38/00

H01F 1/053

(21)Application number :
2000-137210
(71)Applicant :
SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD
(22)Date of filing :
10.05.2000
(72)Inventor :
HIROZAWA SATORU
KANEKIYO HIROKAZU

(54) IRON-BASED ALLOY MAGNET MANUFACTURING METHOD AND DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an iron-based alloy magnet having a crystalline phase structure which cannot be obtained through a usual liquid quenching method.
SOLUTION: A method of manufacturing an iron-based alloy magnet comprises a quenching process (primary roll period) of forming the supercooled liquid of a material alloy by quenching the melt of an iron-based alloy magnet material alloy, and a temperature control process (secondary roll period) of temporarily heating the supercooled liquid before the temperature of the supercooled liquid drops to a glass transition point T_g or below. Therefore, the alloy is cooled down following a cooling route P6, so that a quench alloy containing crystal phases B and C can be obtained.

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any
damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]A manufacturing method of an iron group alloy magnet which includes a quenching process which forms a supercooled liquid of said raw material alloy by quenching a molten metal of a raw material alloy for iron group alloy magnets, and a

temperature control process of performing temporary heating and/or quenching to said alloy before temperature of said alloy becomes lower than a glass transition point.

[Claim 2]A manufacturing method of the iron group alloy magnet according to claim 1 which includes that said quenching process contacts a molten metal of said raw material alloy for iron group alloy magnets on the surface of a rotating quenching roll, and makes said alloy band-like by it.

[Claim 3]A manufacturing method of the iron group alloy magnet according to claim 2 which includes that said temperature control process performs heating and/or quenching to said alloy which is moving in a process in which said alloy made band-like is moving with rotation of said quenching roll in space.

[Claim 4]A manufacturing method of the iron group alloy magnet according to claim 3 which said temperature control process contacts said alloy made band-like on the surface of a rotating secondary roll, and includes performing heating and/or quenching to said alloy by it.

[Claim 5]A manufacturing method of the iron group alloy magnet according to claim 3 which includes that said temperature control process contacts said alloy made band-like on the surface of at least one pair of rotating secondary rolls, and rolls said alloy by it.

[Claim 6]A manufacturing method of the iron group alloy magnet according to any one of claims 1 to 5 which includes further a process which heats said alloy which fell to a temperature lower than a glass transition point after said temperature control process, and advances crystallization and/or crystal growth by it.

[Claim 7]A manufacturing method of the iron group alloy magnet according to any one of claims 1 to 5 which includes further a process of grinding said alloy which fell to a temperature lower than a glass transition point after said temperature control process.

[Claim 8]said alloy -- R-TM-X (an iron-group transition metal element in which R contains a rare earth element and TM contains Fe not less than 70%.) A manufacturing method of an iron group alloy magnet given in claims 1-7 whose X is a rare earth alloy of boron and/or a carbon mold and, as for below 15 atom % and whose X, below 30 atom % and TM are [R / more than pentatomic % / more than pentatomic %] the remainders.

[Claim 9]A manufacturing method of the iron group alloy magnet according to claim 8 whose mean particle diameter of said R₂TM₁₄X compound said alloy contains a Nd₂Fe₁₄B type R₂TM₁₄X compound after said temperature control process, and is 1 nm or more 50 nm or less.

[Claim 10]In a quenching process which forms a supercooled liquid of said raw material alloy by quenching a molten metal of a raw material alloy for iron group alloy magnets, and a process in which said alloy gets cold by free heat dissipation after said quenching process. A manufacturing method of an iron group alloy magnet which includes a temperature control process at which heating and/or quenching are carried out to said alloy, and an average crystal grain diameter generates 1-nm or more a fine crystal phase of 50 nm or less by it before temperature of said alloy falls to a room temperature level.

[Claim 11]A manufacturing method of a bond magnet which includes a process of preparing powder of an iron group alloy magnet produced by a manufacturing method of the iron group alloy magnet according to any one of claims 1 to 10, and a process of fabricating said powder.

[Claim 12]A magnetic manufacturing installation characterized by comprising the following.

A quenching roll which generates an alloy thin band which cools a molten metal of an iron group alloy and is in a supercooled liquid state.

A thermostat which performs heating and/or quenching to said alloy thin band in a process in which said alloy thin band is moving with rotation of said quenching roll in space.

[Claim 13]A manufacturing installation of the iron group alloy magnet according to claim 12 with which said thermostat has the secondary roll with which skin temperature was heated more than a glass transition point.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the manufacturing method and manufacturing installation of an iron group alloy magnet which have fine crystal structure.

[0002]

[Description of the Prior Art]A nano composite magnet is an iron group alloy magnet which those phases combined magnetically including two or more kinds of fine crystal phases. Although it is predicted theoretically that a nano composite magnet demonstrates the high performance which exceeds the haplotype magnet which makes a Nd₂Fe₁₄B phase a main phase, the nano composite magnet with the performance which was excellent such at present is not put in practical use.

[0003]In the conventional method of manufacturing a nano composite magnet, the quenching alloy which contains both the quenching alloy of an amorphous state or an amorphous phase, and a fine crystal phase from a molten metal by fluid rapid quenching, such as a melt spinning process, is produced first. Then, the process of causing crystallization is performed by reheating these quenching alloys.

[0004]When based on the melt spinning process performed using the roll for quenching, a molten metal is contacted on the surface of the rotating roll, by it, the heat of an alloy is taken and quenching is performed. The cooling rate at the time of this quenching is adjusted by controlling the supply rate of a molten metal, and the surface velocity of a quenching roll.

[0005]The time when the alloy touches the quenching roll is very short. For this reason, the alloy which is still in a high temperature state (for example, 700-900 **) will be continuously breathed out from a surface of action with a quenching roll. The alloy of a high temperature state is in the state where it extended for a long time in band-like, and while heat is taken by the surrounding atmosphere, it gets cold further to a room temperature grade.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]Drawing 1 is a graph which shows the temporal change of the alloy temperature in the case of forming a quenching alloy from a molten metal using the conventional rapid quenching. The vertical axis of a graph shows the temperature of an alloy and the horizontal axis shows the lapsed time from contact with a molten metal and a quenching roll by the logarithmic display. If hyperquenching is started so that drawing 1 may show, the alloy (molten metal state) which suited the temperature which exceeds melting point T_M at first will be quickly cooled during the contact with a quenching roll, after starting contact with a quenching roll. Solid line P0 which connects the point a and the point b into the graph of drawing 1 for the temperature change (cooling course) of this period shows. The point a shows the time of the molten metal of an alloy contacting the surface of a quenching roll, and the alloy temperature at that time. On the other hand, the point b shows the time of an alloy separating from the surface of a quenching roll, and the alloy temperature at that time. The period from the point a to the point b is about 0.2-2 milliseconds, and change of the temperature in the period is about 400-900 **. As for a certain grade, the profile of solid line P0 can be controlled with sufficient reproducibility as mentioned above by adjusting roll surface speed, a molten metal supply rate, etc. of a quenching roll.

[0007]On the other hand, the cooling rate of the alloy after separating from a roll is governed by the temperature of the controlled atmosphere with which an alloy contacts, a pressure, the kind, etc. The cooling rate of an alloy belt is sharply changed by whether the alloy belt after roll exfoliation contacts the wall of a roll

rapid cooling device, and a pars basilaris ossis occipitalis.

[0008]Thus, according to conventional technology, the alloy temperature after exfoliating from a quenching roll was not fully controlled or optimized, but was left to low free radiational cooling (natural heat radiation) of reproducibility. Therefore, in a certain case, it might be cooled at the comparatively quick rate, and, in other cases, the alloy might be cooled at the comparatively late rate. In the graph of drawing 1, solid line P1 and P2 show the example of a different cooling course in a free radiational-cooling period, respectively. Relatively, the cooling course shown by solid line P1 corresponds, when a cooling rate is quick, and relatively, the cooling course shown by solid line P2 corresponds, when a cooling rate is slow.

[0009]Even if an alloy controls cooling course P0 in the period in contact with a quenching roll by high accuracy, when the cooling course of the alloy after exfoliating from a quenching roll is left to free radiational cooling, a completely different crystal phase according to change of the cooling course under free radiational cooling will be generated in an alloy. The temperature-segment of time A by which a certain crystal phase A is generated is illustrated by the graph of drawing 1. Although solid line P2 is crossing this field A, solid line P1 is not crossing. In this case, although the crystal phase A is generated by the alloy cooled along with solid line P2, the crystal phase A will not be generated by the alloy cooled along with solid line P1, but it will be in an amorphous state.

[0010]The crystal phase which constitutes a nano composite magnet is a non-equilibrium phase crystallized at the time of hyperquenching or subsequent heat treatment, and exists in metastable in an alloy in ordinary temperature. The kind and quantity of this non-equilibrium phase are kinetically determined by the balance of the diffusion rate of an element and the speed of advance of a transformation interface which constitute an alloy. Therefore, in a temperature-time flat surface as shown in drawing 1, the alloy which passed various cooling courses at the time of quenching (path) will contain a different composition phase.

[0011]Drawing 2 shows the graph of drawing 1, and the similar graph. The point of difference from drawing 1 is at the point that the generation field of the crystal phase B and the crystal phase C is illustrated in addition to the crystal phase A. In the case of the example shown in drawing 2, the crystal phase B is substantially generated by the alloy cooled along with solid line P3, and the crystal phases A and C are hardly generated. On the other hand, in the case of the alloy cooled along with solid line P4, the crystal phase A will occupy most.

[0012]Thus, according to the conventional method, even if cooling parameters, such as revolving speed, the molten metal amount of supply, etc. of a quenching roll, were the same, there was a case where different alloy structure was obtained. And when this obtained the product of the stable quality, it was very inconvenient.

[0013]According to the conventional method, the phase made into the purpose among two or more non equilibrium crystal phases cannot be formed selectively. For example, the case where he would like to generate the crystal phase C of drawing 2 is assumed. In this case, even if it follows what kind of cooling course realizable by free radiational cooling, the quenching alloy which contains the crystal phase C as a main phase cannot be obtained. Therefore, in order to have obtained the alloy which contains the crystal phase C as a main phase, after forming an amorphous alloy with a very early cooling rate, this amorphous alloy needed to be heated quickly, and also isothermal maintenance needed to be carried out, and the crystal phase C needed to be generated. However, in order to have performed such a heat treating method, control of the temperature-up rate, etc. were difficult and it was very difficult to form economically and stably the non equilibrium metal texture made into the purpose.

[0014]This invention is made in view of these many points, and the main purpose is to provide the manufacturing method of the iron group alloy magnet which can form economically and stably the non equilibrium metal texture made into the purpose.

[0015]Other purposes of this invention are to provide the manufacturing installation of a suitable iron group alloy magnet to enforce the manufacturing method of the above-mentioned iron group alloy magnet.

[0016]

[Means for Solving the Problem]A manufacturing method of an iron group alloy magnet by this invention by quenching a molten metal of a raw material alloy for iron group alloy magnets, A quenching process which forms a supercooled liquid of said raw

material alloy, and a temperature control process of performing temporary heating and/or quenching to said alloy before temperature of said alloy becomes lower than a glass transition point are included.

[0017]In a desirable embodiment, said quenching process contacts a molten metal of said raw material alloy for iron group alloy magnets on the surface of a rotating quenching roll, and includes making said alloy band-like by it.

[0018]In a desirable embodiment, said temperature control process includes performing heating and/or quenching to said alloy which is moving in a process in which said alloy made band-like is moving with rotation of said quenching roll in space.

[0019]In a desirable embodiment, said temperature control process contacts said alloy made band-like on the surface of a rotating secondary roll, and includes performing heating and/or quenching to said alloy by it.

[0020]In a desirable embodiment, said temperature control process contacts said alloy made band-like on the surface of at least one pair of rotating secondary rolls, and includes rolling said alloy by it.

[0021]In a desirable embodiment, said alloy which fell to a temperature lower than a glass transition point is heated after said temperature control process, and a process which advances crystallization and/or crystal growth by it is included further.

[0022]In a desirable embodiment, a process of grinding said alloy which fell to a temperature lower than a glass transition point is further included after said temperature control process.

[0023]In a desirable embodiment, said alloy is a rare earth alloy of a R-TM-X (iron-group transition metal element [for which R contains a rare earth element and TM contains Fe not less than 70%], and X are boron and/or carbon) mold, and, as for more than pentatomic %, TM of R is [more than pentatomic % / below 15 atom % / below 30 atom %] the remainder X.

[0024]In a desirable embodiment, a Nd₂Fe₁₄B type R₂TM₁₄X compound is contained after said temperature control process, and mean particle diameter of said R₂TM₁₄X compound is 1 nm or more 50 nm or less.

[0025]Manufacturing methods of an iron group alloy magnet by this invention are a quenching process which forms a supercooled liquid of said raw material alloy by quenching a molten metal of a raw material alloy for iron group alloy magnets, and a process in which said alloy gets cold by free heat dissipation after said quenching process, Before temperature of said alloy falls to a room temperature level, heating and/or quenching are performed to said alloy, and an average crystal grain diameter includes a temperature control process of generating 1-nm or more a fine crystal phase of 50 nm or less, by it.

[0026]A manufacturing method of a bond magnet by this invention includes a process of preparing powder of an iron group alloy magnet produced by a manufacturing method of which iron group alloy magnet of the above, and a process of fabricating said powder.

[0027]A manufacturing installation of an iron group alloy magnet by this invention is provided with the following.

A quenching roll which generates an alloy thin band which cools a molten metal of an iron group alloy and is in a supercooled liquid state.

A thermostat which performs heating and/or quenching to said alloy thin band in a process in which said alloy thin band is moving with rotation of said quenching roll in space.

[0028]In a desirable embodiment, said thermostat has the secondary roll with which skin temperature was heated more than a glass transition point.

[0029]

[Embodiment of the Invention]The quenching process which forms the supercooled liquid of a raw material alloy when the manufacturing method of the iron group alloy magnet by this invention quenches the molten metal of the raw material alloy for iron group alloy magnets, Before the temperature of this supercooled liquid becomes lower than a glass transition point (T_g), the temperature control process of heating or quenching a supercooled liquid temporarily is included. "Quenching" here shall mean taking the heat of an alloy at the rate in which atmosphere is quicker than the rate which takes heat from an alloy, and reducing alloy temperature with a cooling rate quicker than the cooling rate by free radiational cooling by free radiational

cooling.

[0030]With "the supercooled liquid (supercooling solution) of an alloy" used on these specifications. "The alloy whose alloy temperature it is an alloy with glass transition point (glass-transition-temperature or vitrification transition temperature) T_g , and is higher than glass transition point T_g and which is in an amorphous state lower than melting point T_m " shall be meant. In this specification, all will use wording of "a supercooled liquid (supercooling melt)" and "the alloy in a supercooling state" as a thing with the same meaning as "the supercooled liquid of an alloy."

[0031]In order to perform special temperature control processing to the alloy in a supercooled liquid state before the temperature of the supercooled liquid produced by the quenching process as mentioned above becomes lower than glass transition point T_g in this invention, The crystal phase composition of the request which is not obtained depending on the natural heat dissipation which carried the controlled atmosphere can be obtained certainly.

[0032]Hereafter, the fundamental concept of this invention is explained, referring to drawing 3.

[0033]Drawing 3 is a graph which shows the temporal change of the alloy temperature in the case of forming a quenching alloy from a molten metal using fluid rapid quenching. The vertical axis of a graph shows the temperature of an alloy and the horizontal axis shows the lapsed time (logarithmic display) from contact with a molten metal and a quenching roll.

[0034]In drawing 3, the "primary roll" quenched the molten metal by quenching means, such as a single roll or a congruence roll, and has referred to the period which forms the belt (ribbon) of a supercooled liquid state by it. Heat was taken from the alloy belt which is distant from the surface of a quenching roll via atmosphere, and "free radiational cooling" has referred to the period automatically cooled by it. The "secondary roll" has pointed out the period which contacts an alloy thin band and a secondary roll and performs temperature control of an alloy thin band, before the temperature of an alloy belt falls below to glass transition point T_g .

[0035]Solid line P5 in drawing 3 shows the conventional cooling course, and solid line P6 shows the cooling course in the case of being based on this invention. After cooling course P6 passes through the generation field of the crystal phase B on the way, it passed through the generation field of the crystal phase C, and has reached the room temperature level. By following this cooling course, it becomes possible to generate the crystal phase B in a quenching alloy.

[0036]According to this invention, by performing special heat treatment (in this case, heat-treatment) to the alloy belt in a cooling-off period, a different temperature-change profile from the temperature-change profile in the case of being based on free radiational cooling is realized, and it becomes possible to control a metal texture by it so that drawing 3 may show.

[0037]Since it is easy to carry out plastic deformation of the supercooled liquid, if it is before the temperature of the alloy thin band in a supercooled liquid state becomes lower than glass transition point T_g , it can stick an alloy thin band and a secondary roll, and can perform uniform temperature control processing. On the other hand, in order in the case of the rapid solidification alloy cooled to a temperature lower than glass transition point T_g for there to be no deformability in an alloy and to fracture by application of pressure, it cannot stick to a secondary roll and homogeneity, but it becomes difficult to perform temperature control for which it asks with sufficient reproducibility.

[0038]Since it will be easy to carry out plastic deformation if the alloy contacted on a secondary roll is in a supercooled liquid state like this invention, it is easy to fabricate the alloy thin band which pressurizes and changes an alloy using a secondary roll (rolling), and has homogeneous thickness. In this case, it is preferred to keep the alloy thin band which makes the number of rotations of a secondary roll quicker than a primary roll, and is supplied from a primary roll (quenching roll) from accumulating before a secondary roll. Complicated temperature control processing with arbitrary temperature profiles may be performed by arranging other rolls and heaters on the latter part from the position of a secondary roll.

[0039]Hereafter, the desirable embodiment of the iron group alloy magnet by this invention is described.

[0040][Presentation] The iron group alloy magnet produced with the manufacturing method of this invention is a R-TM-X type rare earth permanent magnet. Here, the

iron-group transition metal element in which, as for R, a rare earth element and TM contain Fe not less than 70%, and X are boron and/or carbon. As for the composition ratio of X, as for the composition ratio of R, more than pentatomic % occupies [more than pentatomic % / below 15 atom % / below 30 atom %] the remainder, as for the composition ratio of TM.

[0041] Since a Nd₂Fe₁₄B type R₂TM₁₄X compound does not deposit enough by less than pentatomic % in the composition ratio of the rare earth element R, hard magnetic property is not obtained. Since iron and iron group boride does not deposit if the composition ratio of the rare earth element R exceeds 15 atom %, it does not become a nano composite organization and high magnetization is not obtained. For this reason, as for the range with preferred composition ratio of R, more than pentatomic % is below 15 atom %.

[0042] When the composition ratio of X is less than pentatomic %, even if it uses a melt quenching method, a supercooled liquid state cannot be generated. On the contrary, if the composition ratio of X exceeds 30 atom %, an R₂Fe₁₄B type compound phase will not deposit and hard magnetic property will not be obtained. For this reason, as for the range with preferred composition ratio of B, more than pentatomic % is below 30 atom %. As for the more desirable range of the composition ratio of X, more than six atom % is below 20 atom %.

[0043] TM occupies the content remainder of an above-mentioned element. Since both Curie temperature of coercive force H_{cj} and an R₂Fe₁₄B phase increases by replacing a part of Fe by Co, magnetic heat resistance improves. The substitution percentage over Fe of Co is 0.5% or more of 15% or less preferably.

[0044] One sort or two sorts or more of elements M of aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Zr, Nb, Mo, Ag, Hf, Ta, W, Pt, Au, and Pb may be added for the purpose of improvement in magnetic properties, or expansion of the optimal heat-treatment-temperature region. Since magnetization will fall if the composition ratio of the alloying element M exceeds ten atom %, as for the range with preferred composition ratio of the alloying element M, more than zero atom % is below ten atom %. As for the more desirable range of this composition ratio, more than 0.1 atom % is below pentatomic %.

[0045] When forming a Fe₃B/Nd₂Fe₁₄B system nano composite magnet from the above-mentioned iron group alloy, it is preferred to restrict the rare earth element R and the composition range of X as follows.

[0046] Rare earth element R: 5-7atom% -- desirable -- 5-6atom%X: 15-30atom%. When forming 15-22atom% and an alpha-Fe/Fe₃B/Nd₂Fe₁₄B system nano composite magnet preferably, it is preferred to restrict the rare earth element R and the composition range of X as follows.

[0047] Rare earth element R: 5-13atom% -- desirable -- 6-12atom%X: 7-15atom%. When forming 8-12atom% and also an alpha-Fe/Nd₂Fe₁₄B system nano composite magnet preferably, it is preferred to restrict the composition range of the rare earth elements R and B as follows.

[0048] Rare-earth-element R: They are 7-15atom% and a figure showing the embodiment of the manufacturing installation of an 8-14atom%X: 5-10atom% and according [5-8atom% [manufacturing installation] drawing 4] to this invention preferably iron group alloy magnet preferably. The device currently illustrated is provided with the following.

The nozzle 3 emitted while heating the molten metal 1 with the heater 2.

One pair of quenching rolls 4 for cooling the molten metal 1.

The secondary roll 6 which performs temperature control processing to the supercooled liquid 5 of the alloy cooled by the quenching roll 4.

The heater 7 which holds the surface of the secondary roll 6 to the temperature of a prescribed range.

The hearth 9 of the molten metal 1 is formed between one pair of quenching rolls 4.

[0049] The infrared thermal image metering device 10 for measuring the temperature change of the supercooled liquid 5 of an alloy is shown in drawing 4. According to this device 10, the temperature of each part of an alloy can be measured and it becomes possible to ask for the temporal change of alloy temperature by it.

[0050] Although the alloy in a supercooled liquid state is heated with the secondary roll 4 in the example of composition of drawing 4, it may be made to heat-treat by non-contact to the alloy belt which arranges near the moving trucking of an alloy thin band, other heater means, for example, infrared lamp ANIRA etc., etc., and moves so that it may flow (flight). Heating/cooling systems, such as two or more

pairs of secondary rolls and/or lamp ANIRA, may be arranged complexly, and the composition which can realize a complicated temperature profile may be adopted.

[0051][Manufacturing method] The embodiment of the manufacturing method of the iron group alloy magnet by this invention is described hereafter.

[0052]According to this embodiment, the molten metal which has first the presentation mentioned above is produced, it quenches using the device shown in drawing 4, and the supercooled liquid state of an alloy is formed. Then, an R2Fe14B type compound phase is made to generate in an alloy by performing temperature control processing to the alloy (temperature more than a glass transition point) of a supercooling state. Skin temperature performs this processing using the secondary roll (congruence roll) 6 held at the not less than 100 °C range of 800 °C or less. By performing this temperature control processing, it becomes possible to generate the crystal phase which must have been generated depending on free radiational cooling in a quenching alloy.

[0053]According to this embodiment, temperature control processing with the congruence roll 6 is performed, giving a pressure to an alloy with the congruence roll 6. The supercooled liquid of the above-mentioned alloy has big deformability, and since it is also in a possible state to express it as "metallic glass melt", hot-rolling will be performed with the congruence roll 6. Since it was in the supercooled liquid state, and it is very soft, when in the case of this embodiment the alloy at the time of contacting the congruence roll 6 sets thickness of the alloy before application of pressure with the congruence roll 6 to t and makes t' thickness of the alloy after application of pressure (rolling), it is possible to make rolling reduction (t'/t) or less into 0.9. With such rolling, since uniform contact with the congruence roll 6 and an alloy is realized with sufficient reproducibility, the reproducibility of heat treatment to a supercooled liquid improves.

[0054]In order to obtain the above supercooled liquids, the single chill roll method and congruence chill roll method which used the roll kneader are suitably employable. If a molten metal is quenched with such a melt quenching method with the cooling rate of 10 K / second - 10 K / second, a supercooled liquid will be generated in the process cooled from 800 °C by 500 °C.

[0055]What is necessary is just to carry out roll surface speed of a roll kneader in not less than 2 m/second 20 m/second or less, in order to perform the above-mentioned cooling using a single chill roll method. Since a cooling rate becomes less than 10 K / second when roll surface speed is less than a second in 2 m /, a quenching alloy serves as a crystalline substance, without becoming a supercooled liquid. Since rolling synchronizing with the roll for cooling will become difficult if roll surface speed exceeds a second in 20 m /, it becomes impossible to perform rolling of a supercooled liquid. The range with a preferred roll surface speed is not less than 3 m/second 15 m/second or less.

[0056]What is necessary is just to carry out roll surface speed in not less than 2 m/second 18 m/second or less, in order to perform the above-mentioned cooling using a congruence chill roll method. Since a cooling rate will become less than 10 K / second if roll surface speed is less than a second in 2 m /, a quenching alloy serves as a crystalline substance, without becoming a supercooled liquid. Since it will become a rapid solidification alloy immediately after an alloy exfoliates from a quenching roll if roll surface speed exceeds a second in 18 m /, it becomes impossible to supply a secondary roll with a supercooled liquid state.

[0057]As for the distance between congruence rolls at the time of obtaining a supercooled liquid, it is preferred to use not less than 100 micrometers 1000 micrometers or less. When the distance between congruence rolls is less than 100 micrometers, since an alloy receives rolling with the quenching roll itself, it cannot become a supercooled liquid easily. When the distance between congruence rolls exceeds 1000 micrometers, since it becomes difficult to quench, it is not desirable. The range with a preferred distance between congruence rolls is not less than 120 micrometers 300 micrometers or less.

[0058]In order to produce the supercooled liquid of an alloy with a melt quenching method, it is preferred to make quenching atmosphere into the inert gas atmosphere of 50 or less kPa. When ambient pressure power exceeds 50kPa, a controlled atmosphere becomes is easy to be involved in between the surface of a roll kneader, and a molten metal. If the contamination of such a controlled atmosphere occurs, in order that a gas pocket may arise on the surface of an alloy belt, and uniform

quenching may not be attained but a quenching organization may become uneven, it becomes difficult to form a supercooled liquid stably. Especially the range of 30 or less kPa with a preferred pressure of a controlled atmosphere is about 10 kPa.

[0059]If there is a pressure of 5 or more MPa when heating the quenching alloy of a supercooled liquid state using a congruence roll, it is possible to carry out plastic deformation of the quenching alloy. If the pressure applied to an alloy is increased, it will be necessary to strengthen the bearing and trestle part of a secondary roll. For this reason, the range with a preferred pressure used for rolling is 500 or less MPa of 5 or more MPa. The surface velocity of the congruence roll for heating is adjusted according to rolling reduction, and it is more preferred than the raw material speed by the side of ON to set up quickly 5 to 20%. As for the surface velocity of a secondary roll, since an alloy belt will accumulate between a quenching roll and a secondary roll if the surface velocity of a secondary roll is slower than the surface velocity of a quenching roll, it is preferred that it is quicker than the surface velocity of a quenching roll.

[0060]In order to start the temperature control processing to an alloy, maintaining a supercooling state, it is preferred to heat the surface of a secondary roll to not less than 100 ** a temperature requirement 800 ** or less. When the skin temperature of a secondary roll is less than 100 **, it is not desirable in order that an alloy may crystallize and harden immediately, when the supercooled liquid of an alloy arrives at the surface of a secondary roll. When the skin temperature of a secondary roll exceeds 800 **, since alloy temperature rises rapidly and crystal nucleation speed becomes quick too much, it is not desirable.

[0061]It becomes what differed in the heat flow produced between a secondary roll and an alloy with the relation between the temperature of an alloy when beginning to contact a secondary roll, and the skin temperature of a secondary roll. When the temperature of a secondary roll is relatively high, heat flows into an alloy from a secondary roll, and heating of an alloy with a secondary roll is performed. On the other hand, when the temperature of a secondary roll is relatively low, heat flows into a secondary roll from an alloy, and cooling of an alloy with a secondary roll is performed. In this invention, since it aims at realizing a different temperature profile (temperature changing rate pattern) from free radiational cooling by atmosphere, a temperature change which cannot be realized in free radiational cooling and which was fully controlled can be performed to an alloy by performing heating and quenching of an alloy with a secondary roll.

[0062]As construction material of the roll kneader used for quenching, it is preferred to adopt pure copper, a copper alloy, iron, brass, tungsten, and bronze from a thermally conductive viewpoint. It is preferred from a point of a mechanical strength and economical efficiency to use also in these the alloy which uses copper, iron or copper, and iron as the main ingredients.

[0063]As material of roll of a secondary roll, a coefficient of thermal expansion is small and material with high hardness at the time of heating is preferred. For example, carbon steel, die steel, high speed steel, W-C, molybdenum, ceramics, etc. are employable. It is preferred to use carbon steel and die steel also in these at a point with the high hardness at the time of heating, and the outstanding economical efficiency.

[0064]Although this embodiment explains the example which performs temperature control processing using a secondary roll, temperature control processing in this invention may be performed as mentioned above using heating/cooling system of other types. Generally, when using a secondary roll, the contact period of an alloy belt and a secondary roll surface is comparatively alike -- it is short (0.2-2 milliseconds) -- if a long heating zone and cooling zone are established in the field through which an alloy belt passes, it will become possible to continue comparatively long time (50-1500 milliseconds) and temperature control processing.

[0065]Heat treatment using a publicly known thermal treatment equipment may be performed still more nearly additionally for the purpose of raising magnetic properties by growing up a crystal phase in an amorphous matrix, or raising a degree of order to the alloy after finishing the above-mentioned temperature control processing. Before performing this additional heat treatment, an alloy belt may be ground coarsely.

[0066]The iron group alloy magnet produced by the above method may be applied to various kinds of devices in various modes. After grinding hereafter the iron group alloy magnet produced with the manufacturing method of this invention, how to

manufacture a bond magnet using the powder is explained briefly.

[0067]First, a compound is produced by adding and kneading the binder and additive agent which become the powder of the above-mentioned iron group alloy magnet from an epoxy resin. Next, after carrying out press forming of the compound all over an orientation magnetic field with molding equipment, a final bond magnet can be obtained through a heat cure process, a washing process, a coating process, an inspection process, and a magnetization process. This bond magnet is used suitably for various motors and actuators.

[0068][Crystal structure] The metal texture of the iron basic alloy magnet produced with the manufacturing method of this invention has the nano composite structure where the soft magnetic phase of iron or iron group boride and the hard magnetism compound phase which has an $R_2Fe_{14}B$ type crystal structure are intermingled.

[0069]Each average crystal grain diameter of the above-mentioned soft magnetic phase and a hard magnetism compound phase is 1 nm or more 50 nm or less. If the average crystal grain diameter of each composition phase exceeds 50 nm, the switched connection between each crystal grain child will become weaker, and a hard magnetic phase and a soft magnetic phase will dissociate magnetically. Only the characteristic that a demagnetization curve will be two steps is demonstrated, but it becomes impossible therefore, to obtain the outstanding hard magnetic property. Although the smaller one of the mean particle diameter of the above-mentioned crystal grain is preferred, since it is difficult for an average crystal grain diameter to produce the powder below 1 nm industrially, the minimum of an average crystal grain diameter may be 1 nm.

[0070]The whole organization of an alloy magnet does not need to be a crystalline substance, and the amorphous phase may exist. Since the exchange interaction committed among each crystal grain child can weaken moderately when about 20% or less of amorphous phase remains by the volume ratio, the optimal integrated state is acquired rather magnetically and hard magnetic property may improve. If the volume ratio of an amorphous phase increases exceeding 20%, magnetization will fall. For this reason, in such a case, it is preferred that below 20 volume % carries out the rate of an abundance ratio of an amorphous phase.

[0071]

[Example]In each following example, after quenching the molten metal with the melt quenching method using the device shown in drawing 4 and forming a supercooled liquid state by it, it heat-treated with the congruence roll arranged on the lower berth, and the nano composite magnet was manufactured.

[0072](Example 1) The empirical formula dissolved the raw material alloy in which $Nd_{4.5}Fe_{76.5}B_{18.5}Nb_{0.5}$ is expressed using the crucible which has an orifice 1 mm in diameter at the pars basilaris ossis occipitalis first. Dissolution atmosphere was argon gas of 30kPa. When the temperature of a raw material alloy molten metal became about 1350 **, the molten metal was dropped at the surface of the quenching roll which rotates with the peripheral velocity of 2 m/second, and the quenching process was performed.

[0073]Thus, the temperature of the quenched alloy was measured by the infrared image picturizing method. A result is shown in drawing 5. An alloy shows the cooling course of the period cooled by contact with a quenching roll by the line which connects the point b from the point a in drawing 5. The alloy was temporarily cooled radiationally automatically, after separating from a quenching roll. In this example, the course shown with a dashed line from the point b of drawing 5 was followed, and cooling of the alloy advanced.

[0074]In this example, the secondary roll was rotated with the peripheral velocity of 2.2 m/second, and the skin temperature was set as 850 **. The alloy contacted the secondary roll in c point of drawing 5, and it was heated for about 0.5 milliseconds, receiving modification with a secondary roll. Then, the alloy belt seceded from the secondary roll and went into the heating section 45 cm in length. While [about 0.2 second] passing along the heating section, the alloy belt was heated to the temperature of the point d of drawing 5, and it reached the recall container, flying and cooling the inside of an inert gas atmosphere radiationally after that.

[0075]The alloy generated through such a cooling course was a nano composite alloy in which Fe_3B phase, a $Nd_2Fe_{14}B$ phase, and few $Fe_{23}B_6$ phases exist in an amorphous host phase. This alloy showed the permanent magnet characteristic and was $Br=0.8T$ and $HcJ=220$ kA/m.

[0076]When the amorphous phase was thoroughly crystallized by heat-treating this alloy, each of above-mentioned crystal phases grew, and it became a nano composite magnet whose average crystal grain diameter is about 20 nanometers. The magnetic properties at that time were $B_r=0.9T$ and $H_{cJ}=280$ kA/m.

[0077](Comparative example 1) It dissolved like Example 1 and the same alloy as Example 1 was quenched with the roll which rotates with the peripheral velocity of 6 m/second. He left the alloy belt for cooling radiationally automatically after roll secession. Alloy temperature fell in monotone along the dashed line which passes along the point c from the point b of drawing 5, and reached the temperature near a room temperature as it is.

[0078]This rapid solidification alloy was an amorphous alloy which does not contain a crystal phase substantially. When magnetic properties were measured, the coercive force H_{cJ} was 4 kA/m, and was a soft magnetic material.

[0079](Example 2) The empirical formula dissolved the raw material alloy in which $Nd_{4.5}Fe_{77}B_{18.5}$ is expressed using the crucible which has an orifice 1 mm in diameter at the pars basilaris ossis occipitalis first. Dissolution atmosphere was argon gas of 30kPa. When the temperature of a raw material alloy molten metal became about 1280 **, the molten metal was dropped and quenched on the surface of the quenching roll which rotates with the peripheral velocity of 2 m/second.

[0080]Thus, the temperature of the quenched alloy was measured by the infrared image picturizing method. A result is shown in drawing 6. The cooling course of a period in which the alloy is cooled by contact with a quenching roll is shown in drawing 6 by the line which connects the point b from the point a. The alloy was temporarily cooled radiationally automatically, after seceding from a roll. In drawing 6, the course shown with a dashed line from the point b was followed, and cooling of the alloy advanced.

[0081]In this example, the secondary roll was rotated with the peripheral velocity of 6.6 m/second, and the skin temperature was set as 600 **. In c point of drawing 6, the alloy belt contacted the secondary roll, and it was quenched for about 0.1 milliseconds, receiving modification with a secondary roll. Then, the alloy belt separated from the secondary roll in respect of [d] drawing 6, and it reached the recall container, flying and cooling the inside of an inert gas atmosphere radiationally.

[0082]The collected alloy was constituted by the amorphous phase and the $Fe_{23}B_6$ phase. When this alloy was heated for 50 minutes at 680 **, the $Fe_{23}B_6$ phase, $Fe_3 B$ phase, and the $Nd_2Fe_{14} B$ phase crystallized, and it became a nano composite magnet. Magnetic properties were $B_r=1.1T$ and $H_{cJ}=240$ kA/m.

[0083](Comparative example 2) It quenched from drawing 6 ****a to the point b with the quenching roll which dissolves the same alloy as Example 2 on the same conditions, and rotates with the peripheral velocity of 6 m/second. Then, it cooled to near the room temperature by natural radiational cooling.

[0084]The collected alloy was constituted by the amorphous phase and $Fe_3 B$ phase. When this alloy was heated for 50 minutes at 680 **, $Fe_3 B$ phase and the $Nd_2Fe_{14} B$ phase crystallized, and the magnetic characteristics of $B_r=1.0T$ and $H_{cJ}=220$ kA/m were shown.

[0085]The temperature-time chart of the crystallizing reaction shown in drawing 5 and the graph of drawing 6 is constituted by investigating in detail the crystal phase of the alloy in which cooling processes differ, and is written in into a graph additionally because of explanation of a phenomenon. The diagram by the side of a short time of a graph may not necessarily be exact. Even if it becomes clear that an error is contained by future more detailed research in a diagram, the essence of this invention is not spoiled.

[0086]

[Effect of the Invention]According to this invention, a cooling course can be controlled by rapid quenching in the process in which a quenching alloy is produced from a molten metal, and the non equilibrium metal texture made into the purpose can be formed economically and stably. For this reason, it becomes possible to produce a highly efficient nano composite magnet with sufficient reproducibility.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1]It is a graph which shows the relation of the temperature of an alloy and lapsed time which are cooled by the melt spinning process. The vertical axis of a graph shows the temperature of an alloy and a horizontal axis shows the lapsed time from contact with a molten metal and a quenching roll.

[Drawing 2]They are other graphs which show the relation of the temperature of an alloy and lapsed time which are cooled by the melt spinning process. The vertical axis of a graph shows the temperature of an alloy and a horizontal axis shows the lapsed time from contact with a molten metal and a quenching roll.

[Drawing 3]It is a graph which shows the relation of the temperature of an alloy and lapsed time which are cooled by the manufacturing method of the iron group alloy magnet by this invention. The vertical axis of a graph shows the temperature of an alloy and a horizontal axis shows the lapsed time from contact with a molten metal and a quenching roll.

[Drawing 4]It is a lineblock diagram showing the embodiment of the manufacturing installation of the iron group alloy magnet by this invention.

[Drawing 5]It is a graph which shows the relation of the alloy temperature and lapsed time about Example 1 and the comparative example 2 of a manufacturing method of an iron group alloy magnet by this invention. The vertical axis of a graph shows the temperature of an alloy and a horizontal axis shows the lapsed time from contact with a molten metal and a quenching roll.

[Drawing 6]It is a graph which shows the relation of the alloy temperature and lapsed time about Example 2 and the comparative example 2 of a manufacturing method of an iron group alloy magnet by this invention. The vertical axis of a graph shows the temperature of an alloy and a horizontal axis shows the lapsed time from contact with a molten metal and a quenching roll.

[Description of Notations]

- 1 Molten metal
- 2 Heater
- 3 Nozzle
- 4 Quenching roll
- 5 The supercooled liquid of an alloy
- 6 Secondary roll
- 8 Quenching alloy
- 9 The hearth of a molten metal

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

[Drawing 1]

[Drawing 2]

[Drawing 3]

[Drawing 4]

[Drawing 5]

[Drawing 6]

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2001-319821
(P2001-319821A)

(43)公開日 平成13年11月16日(2001.11.16)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	データベース ⁸ (参考)
H 0 1 F 41/02		H 0 1 F 41/02	G 4 E 0 0 4
B 2 2 D 11/06	3 6 0	B 2 2 D 11/06	3 6 0 C 4 K 0 1 7
	3 7 0		3 7 0 B 4 K 0 1 8
B 2 2 F 1/00		B 2 2 F 1/00	Y 5 E 0 4 0
9/04		9/04	C 5 E 0 6 2
審査請求 未請求 請求項の数13 O L (全 10 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号 特願2000-137210(P2000-137210)

(22)出願日 平成12年5月10日(2000.5.10)

(71)出願人 000183417
住友特殊金属株式会社
大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号
(72)発明者 広沢 哲
大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号
住友特殊金属株式会社山崎製作所内
(72)発明者 金清 裕和
大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号
住友特殊金属株式会社山崎製作所内
(74)代理人 100101683
弁理士 奥田 誠司

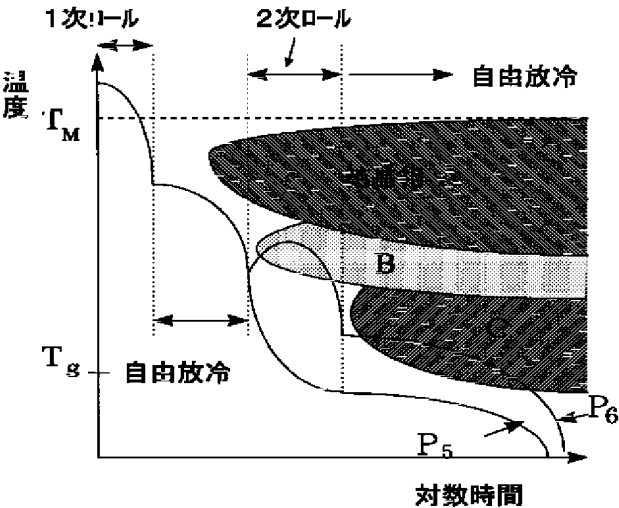
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 鉄基合金磁石の製造方法および製造装置

(57)【要約】

【課題】 従来の液体急冷法によっては得られなかった結晶相構成を備えた鉄基合金磁石を提供する。

【解決手段】 本発明による鉄基合金磁石の製造方法は、鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を急冷することによって原料合金の過冷却液体を形成する急冷工程（1次ロール期間）と、この過冷却液体の温度がガラス転移点 T_g 以下に低下する前に過冷却液体を一時的に加熱する温度調節工程（2次ロール期間）とを包含している。このため、合金は冷却経路 P_6 に従って冷却され、結晶相BおよびCを含有する急冷合金が得られる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を急冷することによって、前記原料合金の過冷却液体を形成する急冷工程と、

前記合金の温度がガラス転移点よりも低くなる前に前記合金に対して一時的な加熱および／または急冷を行う温度調節工程とを包含する鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項2】 前記急冷工程は、回転する急冷ロールの表面に前記鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を接触させ、それによって前記合金を帯状化することを包含する請求項1に記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項3】 前記温度調節工程は、前記帯状化された合金が前記急冷ロールの回転に伴って空間を移動している過程において、移動しつつある前記合金に対する加熱および／または急冷を行うことを包含する請求項2に記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項4】 前記温度調節工程は、回転する2次ロールの表面に前記帯状化された合金を接触させ、それによって、前記合金に対する加熱および／または急冷を実行することを包含する請求項3に記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項5】 前記温度調節工程は、回転する少なくとも1対の2次ロールの表面に前記帯状化された合金を接触させ、それによって前記合金を圧延することを包含する請求項3に記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項6】 前記温度調節工程の後、ガラス転移点よりも低い温度に低下した前記合金を加熱し、それによって結晶化および／または結晶成長を進行させる工程を更に包含する請求項1から5の何れかに記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項7】 前記温度調節工程の後、ガラス転移点よりも低い温度に低下した前記合金を粉砕する工程を更に包含する請求項1から5の何れかに記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項8】 前記合金は、 $R-TM-X$ (R は希土類元素、 TM はFeを70%以上含む鉄族遷移金属元素、 X はボロンおよび／または炭素)型の希土類合金であり、

R は5原子%以上15原子%以下、

X は5原子%以上30原子%以下、

TM は残部である請求項1から7に記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項9】 前記温度調節工程の後、前記合金が $Nd_2Fe_{14}B$ 型の $R_2TM_{14}X$ 化合物を含有し、前記 $R_2TM_{14}X$ 化合物の平均粒径が1nm以上50nm以下である請求項8に記載の鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項10】 鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を急冷することによって、前記原料合金の過冷却液体を形成する急冷工程と、

前記急冷工程の後、前記合金が自由放熱によって冷える

過程で、前記合金の温度が室温レベルに低下する前に、前記合金に対して加熱および／または急冷を行い、それによって平均結晶粒径が1nm以上50nm以下の微細結晶相を生成する温度調節工程とを包含する鉄基合金磁石の製造方法。

【請求項11】 請求項1から10の何れかに記載の鉄基合金磁石の製造方法によって作製された鉄基合金磁石の粉末を用意する工程と、前記粉末を成形する工程と、を包含するボンド磁石の製造方法。

【請求項12】 鉄基合金の溶湯を冷却し、過冷却液体状態にある合金薄帯を生成する急冷ロールと、前記合金薄帯が前記急冷ロールの回転に伴って空間を移動している過程において前記合金薄帯に対して加熱および／または急冷を行う温度調節装置とを備えている鉄基合金磁石の製造装置。

【請求項13】 前記温度調節装置は、表面温度がガラス転移点以上に加熱された2次ロールを有している請求項12に記載の鉄基合金磁石の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、微細結晶組織を有する鉄基合金磁石の製造方法および製造装置に関する。

【0002】

【従来の技術】ナノコンポジット磁石は2種類以上の微細結晶相を含み、それらの相が磁氣的に結合した鉄基合金磁石である。ナノコンポジット磁石は、 $Nd_2Fe_{14}B$ 相を主相とする单相型磁石を凌駕する高性能を発揮することが理論的に予測されているが、現在のところ、そのような優れた性能を持つナノコンポジット磁石は実用化されていない。

【0003】ナノコンポジット磁石を製造する従来の方法では、まず、メルトスピニング法などの液体超急冷法によって合金溶湯から非晶質状態の急冷合金、または、非晶質相および微細結晶相の両方を含む急冷合金を作製する。その後、これらの急冷合金を再加熱することによって結晶化を引き起こす工程が行われる。

【0004】急冷用のロールを用いて行うメルトスピニング法による場合、回転するロールの表面に合金溶湯を接触させ、それによって合金の熱を奪い、急冷を実行する。この急冷時における冷却速度は、合金溶湯の供給レートや急冷ロールの表面速度を制御することによって調節される。

【0005】合金が急冷ロールに接触している時間は極めて短い。このため、まだ高温状態（例えば700～900℃）にある合金が急冷ロールとの接触領域から連続的に吐き出されることになる。高温状態の合金は、帯状に長く延びた状態にあり、周囲の雰囲気中に熱を奪われながら室温程度まで更に冷えてゆく。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】図1は、従来の超急冷法を用いて合金溶湯から急冷合金を形成する場合における合金温度の時間変化を示すグラフである。グラフの縦軸は合金の温度を示し、横軸は合金溶湯と急冷ロールとの接触からの経過時間を対数表示で示している。図1からわかるように、超急冷を開始すると、最初融点 T_0 を超える温度にあった合金（溶湯状態）は、急冷ロールとの接触を開始した後、急冷ロールとの接触期間中に急速に冷却される。この期間の温度変化（冷却経路）を図1のグラフ中において点aと点bとを結ぶ実線 P_0 で示す。点aは合金の溶湯が急冷ロールの表面と接触する時点、および、そのときの合金温度を示している。他方、点bは、合金が急冷ロールの表面から離れる時点、および、そのときの合金温度を示している。点aから点bまでの期間は、0.2～2ミリ秒程度であり、その期間における温度の変化は400～900℃程度である。実線 P_0 のプロファイルは、前述のように、急冷ロールのロール表面速度や溶湯供給レートなどを調節することによって或る程度は再現性良く制御することが可能である。

【0007】これに対し、ロールから離れた後における合金の冷却速度は、合金が接触する雰囲気ガスの温度、圧力、種類などによって支配される。また、ロール剥離後の合金帯がロール急冷装置の内壁や底部と接触するか否かによっても合金帯の冷却速度は大きく変動する。

【0008】このように従来技術によれば、急冷ロールから剥離した後の合金温度は充分に制御または最適化されておらず、再現性の低い自由放冷（自然放熱）に委ねられていた。そのため、合金は、或る場合には比較的速いレートで冷却され、他の場合には比較的遅いレートで冷却されることもあった。図1のグラフにおいて、実線 P_1 および P_2 は、それぞれ、自由放冷期間における異なる冷却経路の例を示している。実線 P_1 で示される冷却経路は、相対的に冷却速度が速い場合に対応し、実線 P_2 で示される冷却経路は、相対的に冷却速度が遅い場合に対応している。

【0009】合金が急冷ロールと接触している期間における冷却経路 P_0 を高い精度で制御したとしても、急冷ロールから剥離した後の合金の冷却経路を自由放冷に委ねてしまうと、自由放冷中の冷却経路の変動に応じて全く異なる結晶相が合金中に生成されてしまうことになる。図1のグラフには、或る結晶相Aが生成される温度-時間領域Aが図示されている。この領域Aを実線 P_2 は横切っているが、実線 P_1 は横切っていない。この場合、実線 P_2 に沿って冷却された合金には結晶相Aが生成されるが、実線 P_1 に沿って冷却された合金には結晶相Aは生成されず、非晶質状態となる。

【0010】ナノコンポジット磁石を構成する結晶相は、超急冷時、またはその後の熱処理時において結晶化した非平衡相であり、常温において合金中に準安定的に存在する。この非平衡相の種類や量は、合金を構成する

元素の拡散速度と変態界面の進行速度との兼ね合いによって速度論的に決定される。従って、図1に示すような温度-時間平面において、急冷時に様々な冷却経路（パス）を通過した合金は、異なる構成相を含むことになる。

【0011】図2は、図1のグラフと類似するグラフを示している。図1からの相違点は、結晶相A以外に結晶相Bおよび結晶相Cの生成領域が図示されている点にある。図2に示す例の場合、実線 P_3 に沿って冷却された合金には、実質的に結晶相Bのみが生成されており、結晶相AおよびCはほとんど生成されない。これに対して、実線 P_4 に沿って冷却された合金の場合、結晶相Aが大部分を占めることになる。

【0012】このように、従来の方法によれば、急冷ロールの回転速度や溶湯供給量などの冷却パラメータが同一であっても、異なる合金組織が得られる場合があった。そして、このことは安定した品質の製品を得る上で極めて不都合であった。

【0013】また、従来の方法によれば、複数の非平衡結晶相のうち、目的とする相を選択的に形成することができない。例えば、図2の結晶相Cを生成したい場合を想定する。この場合、自由放冷によって実現可能な如何なる冷却経路を辿ったとしても、結晶相Cを主相として含む急冷合金を得ることができない。そのため、結晶相Cを主相として含む合金を得るには、極めて早い冷却速度で非晶質合金を形成した後、この非晶質合金を急速に加熱し、更に等温保持して結晶相Cを生成する必要があった。しかし、このような熱処理方法を行うには、昇温レートの制御などが難しく、目的とする非平衡金属組織を経済的かつ安定的に形成することが極めて困難であった。

【0014】本発明はかかる諸点に鑑みてなされたものであり、その主な目的は、目的とする非平衡金属組織を経済的かつ安定的に形成することができる鉄基合金磁石の製造方法を提供することにある。

【0015】本発明の他の目的は、上記鉄基合金磁石の製造方法を実施するのに好適な鉄基合金磁石の製造装置を提供することにある。

【0016】

【課題を解決するための手段】本発明による鉄基合金磁石の製造方法は、鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を急冷することによって、前記原料合金の過冷却液体を形成する急冷工程と、前記合金の温度がガラス転移点よりも低くなる前に前記合金に対して一時的な加熱および／または急冷を行う温度調節工程とを包含する。

【0017】好ましい実施形態において、前記急冷工程は、回転する急冷ロールの表面に前記鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を接触させ、それによって前記合金を帯状化することを包含する。

【0018】好ましい実施形態において、前記温度調節

工程は、前記帯状化された合金が前記急冷ロールの回転に伴って空間を移動している過程において、移動しつつある前記合金に対する加熱および／または急冷を行うことを包含する。

【0019】好ましい実施形態において、前記温度調節工程は、回転する2次ロールの表面に前記帯状化された合金を接触させ、それによって、前記合金に対する加熱および／または急冷を実行することを包含する。

【0020】好ましい実施形態において、前記温度調節工程は、回転する少なくとも1対の2次ロールの表面に前記帯状化された合金を接触させ、それによって前記合金を圧延することを包含する。

【0021】好ましい実施形態において、前記温度調節工程の後、ガラス転移点よりも低い温度に低下した前記合金を加熱し、それによって結晶化および／または結晶成長を進行させる工程を更に包含する。

【0022】好ましい実施形態において、前記温度調節工程の後、ガラス転移点よりも低い温度に低下した前記合金を粉砕する工程を更に包含する。

【0023】好ましい実施形態において、前記合金は、 $R-TM-X$ (R は希土類元素、 TM は Fe を70%以上含む鉄族遷移金属元素、 X はボロンおよび／または炭素)型の希土類合金であり、 R は5原子%以上15原子%以下、 X は5原子%以上30原子%以下、 TM は残部である。

【0024】好ましい実施形態においては、前記温度調節工程の後、 $Nd_2Fe_{14}B$ 型の $R_2TM_{14}X$ 化合物を含有し、前記 $R_2TM_{14}X$ 化合物の平均粒径が1nm以上50nm以下である。

【0025】本発明による鉄基合金磁石の製造方法は、鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を急冷することによって、前記原料合金の過冷却液体を形成する急冷工程と、前記急冷工程の後、前記合金が自由放熱によって冷える過程で、前記合金の温度が室温レベルに低下する前に、前記合金に対して加熱および／または急冷を行い、それによって平均結晶粒径が1nm以上50nm以下の微細結晶相を生成する温度調節工程とを包含する。

【0026】本発明によるボンド磁石の製造方法は、上記何れかの鉄基合金磁石の製造方法によって作製された鉄基合金磁石の粉末を用意する工程と、前記粉末を成形する工程とを包含する。

【0027】本発明による鉄基合金磁石の製造装置は、鉄基合金の溶湯を冷却し、過冷却液体状態にある合金薄帯を生成する急冷ロールと、前記合金薄帯が前記急冷ロールの回転に伴って空間を移動している過程において前記合金薄帯に対して加熱および／または急冷を行う温度調節装置とを備えている。

【0028】好ましい実施形態において、前記温度調節装置は、表面温度がガラス転移点以上に加熱された2次ロールを有している。

【0029】

【発明の実施の形態】本発明による鉄基合金磁石の製造方法は、鉄基合金磁石用原料合金の溶湯を急冷することによって原料合金の過冷却液体を形成する急冷工程と、この過冷却液体の温度がガラス転移点(T_g)よりも低くなる前に過冷却液体を一時的に加熱または急冷する温度調節工程とを包含する。ここでの「急冷」とは、自由放冷によって雰囲気合金から熱を奪うレートよりも速いレートで合金の熱を奪い、自由放冷による冷却速度よりも速い冷却速度で合金温度を低下させることを意味するものとする。

【0030】なお、本明細書で使用する「合金の過冷却液体(過冷却溶体)」とは、「ガラス転移点(ガラス転移温度またはガラス化遷移温度) T_g を持つ合金であって、合金温度がガラス転移点 T_g よりも高く、融点 T_m よりも低い非晶質の状態にある合金」を意味するものとする。また、本明細書では、「過冷却液体(過冷却融体)」や「過冷却状態にある合金」の文言を何れも「合金の過冷却液体」と同様の意味を持つものとして用いることにする。

【0031】本発明では、上述のように急冷工程で作製した過冷却液体の温度がガラス転移点 T_g よりも低くなる前に過冷却液体状態にある合金に対して特別な温度調節処理を実行するため、雰囲気ガスを媒介した自然な放熱によっては得られない所望の結晶相構成を確実に得ることができる。

【0032】以下、図3を参照しながら、本発明の基本的な概念を説明する。

【0033】図3は、液体超急冷法を用いて合金溶湯から急冷合金を形成する場合における合金温度の時間変化を示すグラフである。グラフの縦軸は合金の温度を示し、横軸は合金溶湯と急冷ロールとの接触からの経過時間(対数表示)を示している。

【0034】図3において、「1次ロール」とは、単ロールまたは双ロールなどの急冷手段によって合金溶湯を急冷し、それによって過冷却液体状態の帯(リボン)を形成する期間を指している。また、「自由放冷」とは、急冷ロールの表面から離れた合金帯が雰囲気を介して熱を奪われ、それによって自然に冷却される期間を指している。更に、「2次ロール」は、合金帯の温度がガラス転移点 T_g 以下に低下する前に、合金薄帯と2次ロールとを接触させるなどして合金薄帯の温度調節を行う期間を指している。

【0035】図3中の実線 P_5 は従来の冷却経路を示し、実線 P_6 は本発明による場合の冷却経路を示している。冷却経路 P_6 は、途中で結晶相Bの生成領域を通過した後、結晶相Cの生成領域を通過し、室温レベルに到達している。この冷却経路を辿ることによって、急冷合金中に結晶相Bを生成することが可能になる。

【0036】図3からわかるように、本発明によれば、

冷却期間中の合金帯に対して特別な熱処理（この場合、加熱処理）を施すことによって、自由放冷による場合の温度変化プロファイルとは異なる温度変化プロファイルを実現し、それによって金属組織を制御することが可能になる。

【0037】過冷却液体は塑性変形しやすいため、過冷却液体状態にある合金薄帯の温度がガラス転移点 T_g より低くなる前であれば、合金薄帯と2次ロールとを密着させて均一な温度調節処理を行うことが可能である。これに対し、ガラス転移点 T_g よりも低い温度まで冷却された急冷凝固合金の場合、合金に塑性変形能力がなく、加圧によって破断するため、2次ロールと均一に密着できず、求める温度調節を再現性良く実行することが困難になる。

【0038】本発明のように、2次ロールと接触させる合金が過冷却液体状態にあれば、塑性変形しやすいため、2次ロールを用いて合金を加圧し、変形させ（圧延し）、均質な厚さを有する合金薄帯を成形することが容易である。この場合は、2次ロールの回転数を1次ロールよりも速くし、1次ロール（急冷ロール）から供給される合金薄帯が2次ロールの手前に堆積しないようにすることが好ましい。なお、2次ロールの位置より後段に他のロールやヒータを配することによって、任意の温度プロファイルを持つ複雑な温度調節処理を実行しても良い。

【0039】以下、本発明による鉄基合金磁石の好ましい実施形態を説明する。

【0040】〔組成〕本発明の製造方法で作製される鉄基合金磁石は、 $R-TM-X$ 型の希土類磁石である。ここで、 R は希土類元素、 TM は Fe を70%以上含む鉄族遷移金属元素、 X はボロンおよび／または炭素である。また、 R の組成比率は5原子%以上15原子%以下、 X の組成比率は5原子%以上30原子%以下、 TM の組成比率は残部を占める。

【0041】希土類元素 R の組成比率が5原子%未満では $Nd_2Fe_{14}B$ 型の $R_2TM_{14}X$ 化合物が十分析出しないため、硬磁気特性が得られない。また、希土類元素 R の組成比率が15原子%を超えると、鉄および鉄基硼化合物が析出しないため、ナノコンポジット組織とならず、高い磁化が得られない。このため、 R の組成比率の好ましい範囲は5原子%以上15原子%以下である。

【0042】 X の組成比率が5原子%未満の場合、液体急冷法を用いても、過冷却液体状態を生成することができない。逆に、 X の組成比率が30原子%を超えると、 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相が析出せず、硬磁気特性が得られない。このため、 B の組成比率の好ましい範囲は5原子%以上30原子%以下である。 X の組成比率のより好ましい範囲は6原子%以上20原子%以下である。

【0043】 TM は、上述の元素の含有残余を占める。なお、 Co で Fe の一部を置換することによって保磁力

H_{cJ} および $R_2Fe_{14}B$ 相のキュリー温度の両方が増加するので、磁石の耐熱性が向上する。 Co の Fe に対する置換割合は、好ましくは0.5%以上15%以下である。

【0044】磁気特性の向上や最適熱処理温度域の拡大を目的として、 Al 、 Si 、 Ti 、 V 、 Cr 、 Mn 、 Cu 、 Zn 、 Ga 、 Zr 、 Nb 、 Mo 、 Ag 、 Hf 、 Ta 、 W 、 Pt 、 Au 、 Pb の1種又は2種以上の元素 M を添加しても良い。添加元素 M の組成比率が10原子%を超えると、磁化が低下するため、添加元素 M の組成比率の好ましい範囲は0原子%以上10原子%以下である。この組成比率のより好ましい範囲は0.1原子%以上5原子%以下である。

【0045】なお、上記の鉄基合金から $Fe_3B/Nd_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石を形成する場合は、希土類元素 R および X の組成範囲を以下のように制限することが好ましい。

【0046】希土類元素 R ：5～7原子%、好ましくは5～6原子%

X ：15～30原子%、好ましくは15～22原子%

また、 $\alpha-Fe/Fe_3B/Nd_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石を形成する場合は、希土類元素 R および X の組成範囲を以下のように制限することが好ましい。

【0047】希土類元素 R ：5～13原子%、好ましくは6～12原子%

X ：7～15原子%、好ましくは8～12原子%

更に、 $\alpha-Fe/Nd_2Fe_{14}B$ 系ナノコンポジット磁石を形成する場合は、希土類元素 R および B の組成範囲を以下のように制限することが好ましい。

【0048】希土類元素 R ：7～15原子%、好ましくは8～14原子%

X ：5～10原子%、好ましくは5～8原子%

〔製造装置〕図4は、本発明による鉄基合金磁石の製造装置の実施形態を示す図である。図示されている装置は、合金溶湯1をヒータ2によって加熱しながら放出するノズル3と、合金溶湯1を冷却するための1対の急冷ロール4と、急冷ロール4によって冷却された合金の過冷却液体5に対して温度調節処理を行う2次ロール6と、2次ロール6の表面を所定範囲の温度に保持するヒータ7とを備えている。1対の急冷ロール4の間には、合金溶湯1の湯溜まり9が形成される。

【0049】なお、図4には、合金の過冷却液体5の温度変化を測定するための赤外線熱画像計測装置10が示されている。この装置10によれば、合金各部の温度を測定することができ、それによって合金温度の時間変化を求めることが可能になる。

【0050】図4の構成例では、2次ロール4によって過冷却液体状態にある合金を加熱しているが、他のヒータ手段、例えば赤外線ランプアニールなどを合金薄帯の移動経路近傍に配置し、流れるように移動（飛行）する

合金帯に対して、非接触で熱処理を施すようにしても良い。また、複数対の2次ロールおよび／またはランプアニールなどの加熱／冷却装置を複合的に配置し、複雑な温度プロファイルを実現できる構成を採用しても良い。

【0051】〔製造方法〕以下、本発明による鉄基合金磁石の製造方法の実施形態を説明する。

【0052】本実施形態では、まず、前述した組成を有する合金溶湯を作製し、図4に示す装置を用いて急冷し、合金の過冷却液体状態を形成する。その後、過冷却状態の合金（温度はガラス転移点以上）に対して温度調節処理を施すことによって、 $R_2Fe_{14}B$ 型化合物相を合金中に生成させる。この処理は、表面温度が 100°C 以上 800°C 以下の範囲に保持された2次ロール（双ロール）6を用いて行う。この温度調節処理を行うことにより、自由放冷によっては生成され得ない結晶相を急冷合金中に生成することが可能になる。

【0053】本実施形態では、双ロール6による温度調節処理を、双ロール6によって合金に圧力を与えながら実行する。上記合金の過冷却液体は大きな塑性変形能を有しており、「金属ガラス融体」と表現することも可能な状態にあるため、双ロール6によって熱間圧延が実行されることになる。本実施形態の場合、双ロール6と接触する時点における合金が過冷却液体状態にあり、非常に柔らかいため、双ロール6による加圧前の合金の厚さを t とし、加圧（圧延）後の合金の厚さを t' とした場合、圧下率（ t'/t ）を0.9以下にすることが可能である。このような圧延によって、双ロール6と合金との均一な接触が再現性良く実現するため、過冷却液体に対する熱処理の再現性が向上する。

【0054】上述のような過冷却液体を得るためには、回転ロールを用いた単ロール急冷法および双ロール急冷法を好適に採用することができる。このような液体急冷法によって合金溶湯を $10^3\text{K}/\text{秒} \sim 10^5\text{K}/\text{秒}$ の冷却速度で急冷すると、 800°C から 500°C までに冷却する過程で過冷却液体が生成される。

【0055】単ロール急冷法を用いて上記の冷却を実行するには、回転ロールのロール表面速度を $2\text{m}/\text{秒}$ 以上 $20\text{m}/\text{秒}$ 以下にすれば良い。ロール表面速度が $2\text{m}/\text{秒}$ を下回る場合、冷却速度が $10^3\text{K}/\text{秒}$ 未満となるため、急冷合金は過冷却液体にならずに結晶質となる。また、ロール表面速度が $20\text{m}/\text{秒}$ を超えると、冷却用のロールと同期して圧延を行うことが困難となるため、過冷却液体の圧延を実行することができなくなる。ロール表面速度の好ましい範囲は $3\text{m}/\text{秒}$ 以上 $15\text{m}/\text{秒}$ 以下である。

【0056】双ロール急冷法を用いて上記の冷却を実行するには、ロール表面速度を $2\text{m}/\text{秒}$ 以上 $18\text{m}/\text{秒}$ 以下にすれば良い。ロール表面速度が $2\text{m}/\text{秒}$ を下回ると、冷却速度が $10^3\text{K}/\text{秒}$ 未満となるため、急冷合金は過冷却液体にならずに結晶質となる。また、ロール表

面速度が $18\text{m}/\text{秒}$ を超えると、合金が急冷ロールから剥離した直後に急冷凝固合金となるため、過冷却液体状態のまま2次ロールへ供給することができなくなる。

【0057】過冷却液体を得る際の双ロール間距離は、 $100\mu\text{m}$ 以上 $1000\mu\text{m}$ 以下にすることが好ましい。双ロール間距離が $100\mu\text{m}$ を下回る場合、合金は急冷ロールそのものによっても圧延を受けるため、過冷却液体になりにくい。双ロール間距離が $1000\mu\text{m}$ を超える場合は、急冷しにくくなるため好ましくない。双ロール間距離の好ましい範囲は $120\mu\text{m}$ 以上 $300\mu\text{m}$ 以下である。

【0058】液体急冷法によって合金の過冷却液体を作製するには、急冷雰囲気圧を 50kPa 以下の不活性ガス雰囲気にすることが好ましい。雰囲気圧力が 50kPa を超える場合、回転ロールの表面と合金溶湯との間に雰囲気ガスが巻き込まれやすくなる。そのような雰囲気ガスの巻き込みが発生すると、合金帯の表面にガスポケットが生じ、均一な急冷が達成されず、急冷組織が不均一化するため、安定的に過冷却液体を形成することが困難になる。雰囲気ガスの圧力の好ましい範囲は、 30kPa 以下、特に 10kPa 程度である。

【0059】双ロールを用いて過冷却液体状態の急冷合金を加熱する際、 5MPa 以上の圧力があれば、急冷合金を塑性変形することが可能である。合金に加える圧力を増大させると、2次ロールの軸受けおよび架台部を強固にする必要が生じる。このため、圧延に用いる圧力の好ましい範囲は 5MPa 以上 500MPa 以下である。加熱用双ロールの表面速度は圧下率に応じて調整され、入側の素材速度よりも $5 \sim 20\%$ 速く設定することが好ましい。2次ロールの表面速度が急冷ロールの表面速度よりも遅いと、急冷ロールと2次ロールとの間に合金帯がたまるため、2次ロールの表面速度は急冷ロールの表面速度よりも速いことが好ましい。

【0060】過冷却状態を維持しながら合金に対する温度調節処理を開始するためには、2次ロールの表面を 100°C 以上 800°C 以下の温度範囲に加熱することが好ましい。2次ロールの表面温度が 100°C を下回る場合、合金の過冷却液体が2次ロールの表面に到達した時点ですぐに合金が結晶化し、硬化するために好ましくない。また、2次ロールの表面温度が 800°C を超える場合、合金温度が急激に上昇して結晶核生成速度が速くなりすぎるので好ましくない。

【0061】2次ロールに接触し始めるときの合金の温度と、2次ロールの表面温度との関係によって、2次ロールと合金との間に生じる熱の流れが異なったものとなる。2次ロールの温度が相対的に高い場合、熱は2次ロールから合金に流れ、2次ロールによる合金の加熱が行われる。これに対し、2次ロールの温度が相対的に低い場合、熱は合金から2次ロールに流れ、2次ロールによる合金の冷却が行われる。本発明では、雰囲気による自

由放冷とは異なる温度プロファイル（温度変化速度パターン）を実現することを目的とするため、2次ロールで合金の加熱や急冷を行うことにより、自由放冷では実現できないような十分に制御された温度変化を合金に対して施すことができる。

【0062】急冷に用いる回転ロールの材質としては、熱伝導性の観点から、純銅、銅合金、鉄、真鍮、タングステン、および青銅を採用することが好ましい。これらの中でも、銅、鉄、または銅および鉄を主成分とする合金を用いることが、機械的強度および経済性の点から好ましい。

【0063】2次ロールのロール材質としては、熱膨張係数が小さく、加熱時の硬度が高い材料が好ましい。例えば、炭素鋼、ダイス鋼、ハイスpeed鋼、W-C、モリブデン、セラミック等を採用することができる。これらの中でも、炭素鋼およびダイス鋼を用いることが、加熱時における高い硬度と優れた経済性を持つ点で好ましい。

【0064】本実施形態では、2次ロールを用いて温度調節処理を行う例を説明しているが、前述のように、本発明における温度調節処理は他のタイプの加熱／冷却装置を用いて実行しても良い。一般に、2次ロールを用いる場合、合金帯と2次ロール表面との接触期間が比較的に短い（0.2～2ミリ秒）が、合金帯の通過する領域に長い加熱ゾーンや冷却ゾーンを設ければ、比較的に長い時間（50～1500ミリ秒）、温度調節処理を続けることが可能になる。

【0065】上記の温度調節処理を終えた後の合金に対しては、結晶相を非晶質マトリクス中で成長させたり、規則度を高めたりすることによって磁気特性を向上させることを目的に、公知の熱処理装置を用いた熱処理を更に付加的に行ってもよい。また、この付加的な熱処理を行う前に合金帯を粗く粉碎しても良い。

【0066】以上の方法で作製された鉄基合金磁石は、種々の態様で各種の装置に応用され得る。以下、本発明の製造方法によって作製した鉄基合金磁石を粉碎した後、その粉末を用いてボンド磁石を製造する方法を簡単に説明する。

【0067】まず、上記の鉄基合金磁石の粉末にエポキシ樹脂からなるバインダーと添加剤とを加え、混練することによってコンパウンドを作製する。次に、コンパウンドを成形装置によって配向磁場中でプレス成形した後、加熱硬化工程、洗浄工程、コーティング工程、検査工程、着磁工程を経て、最終的なボンド磁石を得ることができる。このボンド磁石は、種々のモータやアクチュエータに好適に用いられる。

【0068】〔結晶構造〕本発明の製造方法によって作製した鉄基合金磁石の金属組織は、鉄や鉄基硼化合物の軟磁性相と、 $R_2Fe_{14}B$ 型結晶構造を有する硬磁性化合物相とが混在するナノコンポジット構造を有してい

る。

【0069】上記の軟磁性相および硬磁性化合物相の平均結晶粒径は、何れも、1nm以上50nm以下である。各構成相の平均結晶粒径が50nmを超えると、各結晶粒子間の交換結合が弱まり、硬磁性相と軟磁性相が磁氣的に分離する。そのため、減磁曲線が二段になる特性しか発揮されず、優れた硬磁気特性を得ることができなくなる。上記結晶粒の平均粒径は小さい方が好ましいが、平均結晶粒径が1nm未満の粉末を工業的に生産することが困難であるため、平均結晶粒径の下限は1nmとする。

【0070】合金磁石の組織全体が結晶質である必要はなく、非晶質相が存在していても良い。体積比で約20%以下の非晶質相が残存している場合、各結晶粒子間に働く交換相互作用が適度に弱められるため、かえって磁氣的に最適な結合状態が得られ、硬磁気特性が向上する場合がある。非晶質相の体積比率が20%を超えて増加すると、磁化が低下する。このため、このような場合には、非晶質相の存在比率を20体積%以下とすることが好ましい。

【0071】

【実施例】以下の各実施例では、図4に示す装置を用いた液体急冷法によって合金溶湯を急冷し、それによって過冷却液体状態を形成した後、下段に配した双ロールによって熱処理を施し、ナノコンポジット磁石を製造した。

【0072】（実施例1）まず、直径が1mmのオリフィスを底部に有する坩堝を用いて、組成式が $Nd_{4.5}Fe_{76.5}B_{18.5}Nb_{0.5}$ の表現される原料合金を溶解した。溶解雰囲気は30kPaのアルゴンガスであった。原料合金溶湯の温度が約1350℃になった時、周速度2m/秒で回転する急冷ロールの表面に溶湯を滴下し、急冷工程を実行した。

【0073】このようにして急冷した合金の温度を赤外線画像撮像法によって測定した。結果を図5に示す。合金が急冷ロールとの接触によって冷却される期間の冷却経路を図5において点aから点bを結ぶ線で示す。合金は、急冷ロールから剥がれた後、一時的に自然放冷された。本実施例では、図5の点bから破線で示される経路をたどって合金の冷却が進行した。

【0074】本実施例では、2次ロールを周速度2.2m/秒で回転させ、その表面温度を850℃に設定した。合金は、図5のc点において2次ロールと接触し、約0.5ミリ秒間、2次ロールによる変形を受けながら、加熱された。その後、合金帯は2次ロールを離脱し、長さ45cmの加熱区間に入った。加熱区間を通る約0.2秒の間、合金帯は図5の点dの温度まで加熱され、その後、不活性ガス雰囲気中を飛行し、放冷されつつ製品回収容器に到達した。

【0075】このような冷却経路を経て生成された合金

は、 Fe_3B 相、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相、および、僅かの Fe_{23}B_6 相がアモルファス母相中に存在するナノコンポジット合金であった。この合金は永久磁石特性を示し、 $B_r=0.8\text{T}$ 、 $H_{cJ}=220\text{kA/m}$ であった。

【0076】この合金を熱処理することによってアモルファス相を完全に結晶化させると、上記の各結晶相が成長し、平均結晶粒径がおおよそ20ナノメートルのナノコンポジット磁石となった。そのときの磁気特性は、 $B_r=0.9\text{T}$ 、 $H_{cJ}=280\text{kA/m}$ であった。

【0077】（比較例1）実施例1と同じ合金を実施例1と同様にして溶解し、周速度6m/秒で回転するロールによって急冷した。ロール離脱後、合金帯は自然放冷されるに任せた。合金温度は、図5の点bから点cを通る破線に沿って単調に低下し、そのまま室温付近の温度に達した。

【0078】この急冷凝固合金は、実質的に結晶相を含まないアモルファス合金であった。磁気特性を測定すると、その保磁力 H_{cJ} は4kA/mであり、軟磁性体であった。

【0079】（実施例2）まず、直径が1mmのオリフィスを底部に有する坩堝を用いて、組成式が $\text{Nd}_{4.5}\text{Fe}_{77}\text{B}_{18.5}$ の表現される原料合金を溶解した。溶解雰囲気は30kPaのアルゴンガスであった。原料合金溶湯の温度が約1280℃になった時、周速度2m/秒で回転する急冷ロールの表面に溶湯を滴下し、急冷した。

【0080】このようにして急冷した合金の温度を赤外線画像撮像法によって測定した。結果を図6に示す。合金が急冷ロールとの接触によって冷却されている期間の冷却経路は、図6において、点aから点bを結ぶ線で示される。合金は、ロールから離脱した後、一時的に自然放冷された。図6において、点bから破線で示される経路をたどって合金の冷却が進行した。

【0081】本実施例では、2次ロールを周速度6.6m/秒で回転させ、その表面温度を600℃に設定した。合金帯は、図6のc点において、2次ロールと接触し、約0.1ミリ秒間、2次ロールによる変形を受けながら、急冷された。その後、合金帯は図6の点dにて2次ロールから離れ、不活性ガス雰囲気中を飛行し、放冷されつつ製品回収容器に到達した。

【0082】回収された合金は、アモルファス相と Fe_{23}B_6 相とにより構成されていた。この合金を680℃で50分間加熱すると、 Fe_{23}B_6 相、 Fe_3B 相、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が結晶化し、ナノコンポジット磁石となった。磁気特性は、 $B_r=1.1\text{T}$ 、 $H_{cJ}=240\text{kA/m}$ であった。

【0083】（比較例2）実施例2と同じ合金を同一の条件で溶解し、周速度6m/秒で回転する急冷ロールにより、図6ま点aから点bまで急冷した。その後、自然放冷により、室温近傍まで冷却した。

【0084】回収した合金はアモルファス相と Fe_3B

相とによって構成されていた。この合金を680℃で50分間加熱すると、 Fe_3B 相および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が結晶化し、 $B_r=1.0\text{T}$ 、 $H_{cJ}=220\text{kA/m}$ の磁石特性を示した。

【0085】なお、図5および図6のグラフ中に示した結晶化反応の温度-時間線図は、冷却過程の異なる合金の結晶相を詳細に調べることによって構成したものであり、現象の説明のために補足的にグラフ中に書き込んだものである。グラフの短時間側における線図は必ずしも正確ではない可能性がある。将来、より詳細な研究によって線図に誤りが含まれることが明らかになったとしても、本発明の本質が損なわれるものではない。

【0086】

【発明の効果】本発明によれば、超急冷法によって合金溶湯から急冷合金を作製する過程で冷却経路を制御し、目的とする非平衡金属組織を経済的かつ安定的に形成することができる。このため、高性能のナノコンポジット磁石を再現性良く生産することが可能になる。

【図面の簡単な説明】

【図1】メルトスピニング法によって冷却される合金の温度と経過時間との関係を示すグラフである。グラフの縦軸が合金の温度を示し、横軸が合金溶湯と急冷ロールとの接触からの経過時間を示す。

【図2】メルトスピニング法によって冷却される合金の温度と経過時間との関係を示す他のグラフである。グラフの縦軸が合金の温度を示し、横軸が合金溶湯と急冷ロールとの接触からの経過時間を示す。

【図3】本発明による鉄基合金磁石の製造方法によって冷却される合金の温度と経過時間との関係を示すグラフである。グラフの縦軸が合金の温度を示し、横軸が合金溶湯と急冷ロールとの接触からの経過時間を示す。

【図4】本発明による鉄基合金磁石の製造装置の実施形態を示す構成図である。

【図5】本発明による鉄基合金磁石の製造方法の実施例1および比較例2に関する合金温度と経過時間との関係を示すグラフである。グラフの縦軸が合金の温度を示し、横軸が合金溶湯と急冷ロールとの接触からの経過時間を示す。

【図6】本発明による鉄基合金磁石の製造方法の実施例2および比較例2に関する合金温度と経過時間との関係を示すグラフである。グラフの縦軸が合金の温度を示し、横軸が合金溶湯と急冷ロールとの接触からの経過時間を示す。

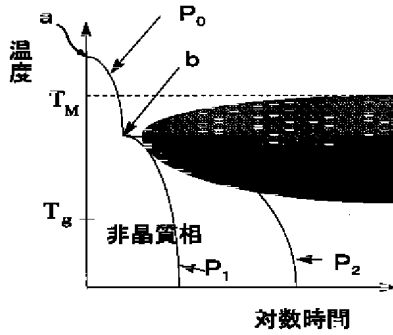
【符号の説明】

- 1 合金溶湯
- 2 ヒータ
- 3 ノズル
- 4 急冷ロール
- 5 合金の過冷却液体
- 6 2次ロール

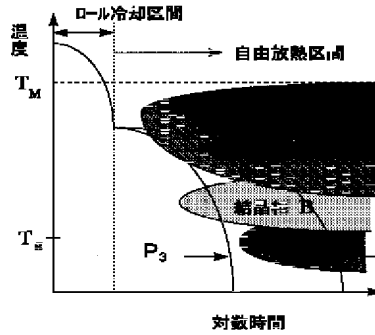
8 急冷合金

9 合金溶湯の湯溜まり

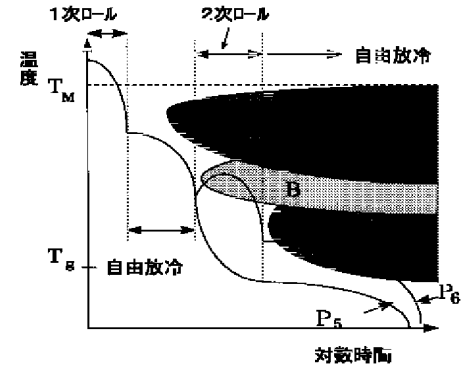
【図1】



【図2】

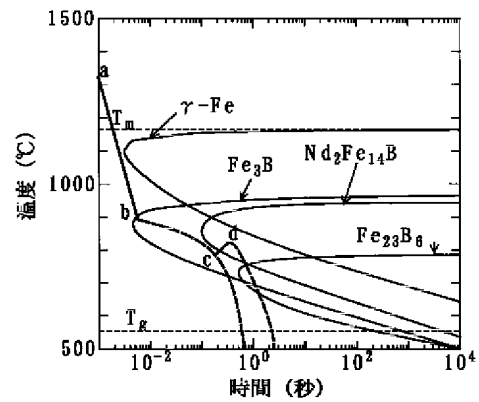
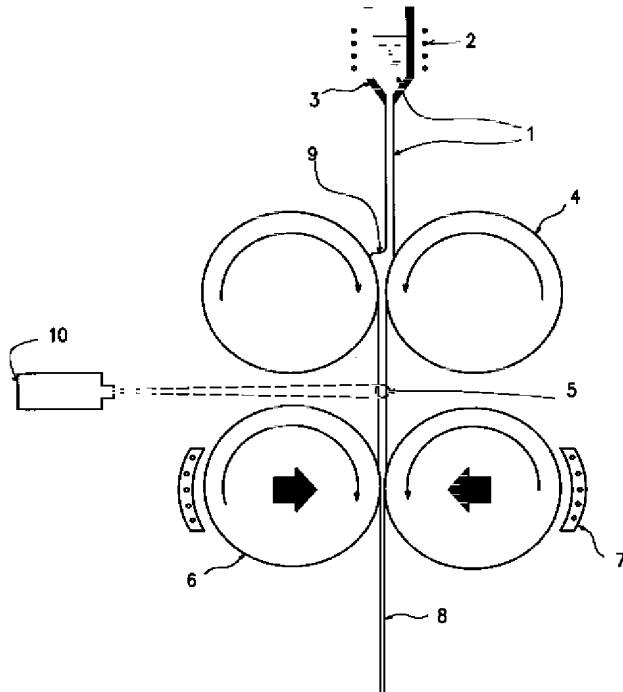


【図3】

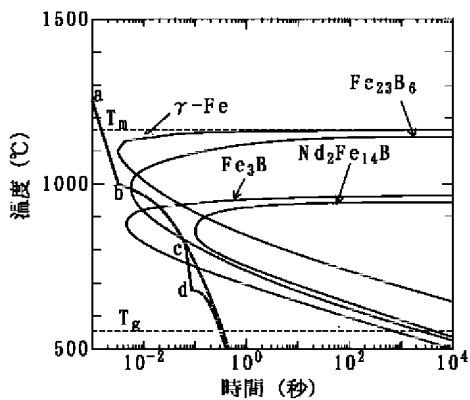


【図4】

【図5】



【図6】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	(参考)
B 2 2 F 9/04		B 2 2 F 9/04	E
C 2 1 D 6/00		C 2 1 D 6/00	B
C 2 2 C 38/00	3 0 3	C 2 2 C 38/00	3 0 3 D
H 0 1 F 1/053		H 0 1 F 1/04	H

Fターム(参考) 4E004 DB03 TA03 TB02 TB04
 4K017 AA04 BA06 BB12 BB18 DA04
 DA05 EA03
 4K018 AA27 BA18 BB07 BD01 KA46
 5E040 AA03 AA04 AA19 BD00 CA01
 HB00 HB05 HB07 HB11 HB17
 HB19 NN01 NN06
 5E062 CC04 CC05 CD04 CE01 CE05
 CG01 CG02 CG03